

Rh(111) 及 Rh@Cu(111) 表面乙烯氢甲酰化反应选择性的理论研究

马秀芳, 赵永慧, 苏海燕, 李微雪*

中国科学院大连化学物理研究所催化基础国家重点实验室, 辽宁大连 116023

MA Xiufang, ZHAO Yonghui, SU Haiyan, LI Weixue*

State Key Laboratory of Catalysis, Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian 116023, Liaoning, China

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章

Download: PDF (402KB) [HTML](#) (1KB) Export: BibTeX or EndNote (RIS) Supporting Info

摘要 采用密度泛函理论对比研究了 Rh(111) 表面与 Rh@Cu(111) 表面合金上乙基加氢反应及 CO 插入反应过程. 结果发现, 与 Rh(111) 表面相比, Rh@Cu(111) 表面合金的集团效应和配体效应使得加氢反应的能垒降低了 0.12 eV, 而 CO 插入反应的却显著降低了 0.78 eV. 这表明 RhCu 合金催化剂可以有效地提高氢甲酰化反应的选择性.

关键词: 氢甲酰化 铑 铜 合金 密度泛函理论

Abstract: Selectivity-determining steps for ethylene hydroformylation, i.e., ethyl hydrogenation versus CO insertion on Rh(111) and Rh@Cu(111) surfaces were investigated by density functional theory calculations. Compared with the Rh(111) surface, the Rh@Cu(111) surface decreases the hydrogenation barrier by 0.12 eV and more significantly the CO insertion barrier by 0.78 eV due to the ensemble and ligand effects. This result indicates that Rh@Cu(111) alloy catalyst can improve the selectivity of the hydroformylation.

Keywords: hydroformylation, rhodium, copper, alloy, density functional theory

收稿日期: 2012-06-15; 出版日期: 2012-08-15

Service
▶ 把本文推荐给朋友
▶ 加入我的书架
▶ 加入引用管理器
▶ Email Alert
▶ RSS
作者相关文章
▶ 马秀芳
▶ 赵永慧
▶ 苏海燕
▶ 李微雪

引用本文:

马秀芳, 赵永慧, 苏海燕等. Rh(111) 及 Rh@Cu(111) 表面乙烯氢甲酰化反应选择性的理论研究[J] 催化学报, 2012, V33(10): 1706-1711

MA Xiu-Fang, ZHAO Yong-Hui, SU Hai-Yan etc. Theoretical Study of Selectivity of Ethylene Hydroformylation on Rh(111) and Rh@Cu(111) Surfaces[J] Chinese Journal of Catalysis, 2012, V33(10): 1706-1711

链接本文:

<http://www.chxb.cn/CN/10.3724/SP.J.1088.2012.20617> 或 <http://www.chxb.cn/CN/Y2012/V33/I10/1706>

- [1] Eilbracht P, Bäracker L, Buss C, Hollmann C, Kitsos-Rzychon B E, Kranemann C L, Rische T, Roggenbuck R, Schmidt A. Chem Rev, 1999, 99: 3329
- [2] Xiao F S, Ichikawa M. J Catal, 1994, 147: 578
- [3] 袁茂林, 付海燕, 李瑞祥, 陈华, 李贤均. 催化学报 (Yuan M L, Fu H Y, Li R X, Chen H, Li X J. Chin J Catal), 2010, 31: 1093
- [4] 严丽, 丁杰, 刘佳, 朱何俊, 林励吾. 催化学报 (Yan L, Ding Y J, Liu J, Zhu H J, Lin L W. Chin J Catal), 2011, 32: 31
- [5] McClure S M, Lundwall M J, Goodman D W. Proc Natl Acad Sci, 2011, 108: 931
- [6] Sivasankar N, Frei H. J Phys Chem C, 2011, 115: 7545
- [7] Balakos M W, Chuang S S C. J Catal, 1995, 151: 253
- [8] Ko M K, Frei H. J Phys Chem B, 2004, 108: 1805
- [9] Wasylenko W, Frei H. J Phys Chem B, 2005, 109: 16873
- [10] Chuang S S C, Stevens R W, Khatri R. Top Catal, 2005, 32: 225
- [11] Kyriakou G, Boucher M B, Jewell A D, Lewis E A, Lawton T J, Baber A E, Tierney H L, Flytzani-Stephanopoulos M, Sykes E C H. Science, 2012, 335: 1209
- [12] Chen M, Kumar D, Yi C W, Goodman D W. Science, 2005, 310: 291
- [13] Zhao Y H, Yang M M, Sun D P, Su H Y, Sun K J, Ma X F, Bao X H, Li W X. J Phys Chem C, 2011, 115: 18247
- [14] Kresse G, Furthmüller J. Comp Mater Sci, 1996, 6: 15

- [15] Kresse G, Furthmüller J. Phys Rev B, 1996, 54: 11169
- [16] Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M. Phys Rev Lett, 1996, 77: 3865
- [17] Perdew J P, Wang Y. Phys Rev B, 1992, 45: 13244
- [18] Singh H P. Acta Crystallogr, 1968, A24: 469
- [19] Straumanis M E, Yu L S. Acta Crystallogr, 1969, A25: 676
- [20] Henkelman G, Jonsson H. J Chem Phys, 2000, 113: 9978
- [21] Henkelman G, Uberuaga B P, Jonsson H. J Chem Phys, 2000, 113: 9901
- [22] Li M, Guo W Y, Jiang R B, Zhao L M, Lu X Q, Zhu H Y, Fu D L, Shan H H. J Phys Chem C, 2010, 114: 8440
- [1] 尹伟, 林花香, 章永凡, 黄昕, 陈文凯.铜族金属与完整及氮掺杂石墨烯的相互作用[J]. 催化学报, 2012,33(9): 1578-1585
- [2] 石川, 徐力, 朱爱民, 张玉卓, 区泽棠.氧化铈稳定的 CuO 簇在 CO, C₃H₆ 和 NO 消除中的催化性能[J]. 催化学报, 2012,33(9): 1455-1462
- [3] 闫少伟, 范辉, 梁川, 李忠, 于智慧.二硝基甲苯低压加氢 Ni-La-B 非晶态合金催化剂的制备及结构表征[J]. 催化学报, 2012,33(8): 1374-1382
- [4] 余强, 高飞, 董林.铜基催化剂用于一氧化碳催化消除研究进展[J]. 催化学报, 2012,33(8): 1245-1256
- [5] 顾向奎, 丁戊辰, 黄传奇, 李微雪.Pd 掺杂对 ZnO(1120) 面上水解离的影响[J]. 催化学报, 2012,33(8): 1427-1431
- [6] 赵兰兰, 陈吉祥.P 对 Cu/Al₂O₃ 催化剂结构及其催化甘油氢解反应性能的影响[J]. 催化学报, 2012,33(8): 1410-1416
- [7] 王达, 张因, 李海涛, 赵丽丽, 张鸿喜, 赵永祥.Ni-Cu/Al₂O₃ 催化剂上顺酐液相选择加氢制丁二酸酐反应性能[J]. 催化学报, 2012,33(7): 1229-1235
- [8] 温在恭, 李虎, 翁维正, 夏文生, 黄传敬, 万惠霖.Rh/SiO₂ 催化剂上甲烷部分氧化制合成气的反应机理[J]. 催化学报, 2012,33(7): 1183-1190
- [9] 张跃, 孙薇, 石雷, 孙琪.ZnO 或 K₂O 助剂对 Cu/SiO₂-Al₂O₃ 催化剂上丙三醇和苯胺气相催化合成 3-甲基吡啶反应的促进作用[J]. 催化学报, 2012,33(6): 1055-1060
- [10] 廖兰, 黄彩霞, 陈劲松, 吴月婷, 韩志钟, 潘海波, 沈水发.高比表面积 CuPc/TiO₂ 纳米管复合材料的制备及其可见光光催化活性[J]. 催化学报, 2012,33(6): 1048-1054
- [11] 陈维苗, 丁云杰, 宋宪根, 朱何俊, 严丽, 王涛.助剂促进的 Rh-Fe/Al₂O₃ 催化剂上 CO 加氢制乙醇反应性能[J]. 催化学报, 2012,33(6): 1007-1013
- [12] 邱文革, 王昱, 李传强, 展宗城, 訾学红, 张桂臻, 王锐, 何洪.活化温度对 CuBTC 催化 CO 氧化反应性能的影响[J]. 催化学报, 2012,33(6): 986-992
- [13] 夏明玉, 曹晓霞, 倪哲明, 施炜, 付晓微.Cu(111) 面上糠醇加氢生成 2-甲基呋喃的反应机理[J]. 催化学报, 2012,33(6): 1000-1006
- [14] 梁浩然, 张林, 郑学丽, 付海燕, 袁茂林, 李瑞祥, 陈华.双膦配体修饰铈催化乙酸乙烯酯氢甲酰化反应[J]. 催化学报, 2012,33(6): 977-981
- [15] 吴德智, 范希梅, 代佳, 刘花蓉, 刘红, 张冯章.硫化亚铜/四针状氧化锌晶须纳米复合材料的制备及其光催化性能[J]. 催化学报, 2012,33(5): 802-807